Device for alcohol distillation with a low energy usage.

Patent number:

FR2553098

Publication date:

1985-04-12

Inventor:

LAUMER DANIEL DE SAINT

Applicant:

CEZILLY FRANCOIS (FR)

Classification:

- international:

B01D3/00; B01D3/10; B01D3/00; B01D3/10; (IPC1-7):

C12F1/00

- european:

B01D3/00A; B01D3/10

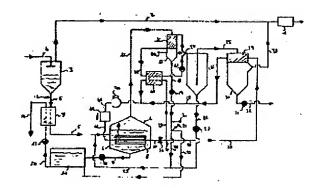
Application number: FR19830008101 19830511

Priority number(s): FR19830008101 19830511

Report a data error here

Abstract of FR2553098

Device intended for carrying out the distillation of alcohol with a low energy usage. The device is characterised by the presence of a vacuum pump 1 which keeps it at a low pressure (of the order of approximately 150 mb). The energy necessary for the vaporisation is supplied by the condenser 8 of a heat pump which is placed in the vaporisation vessel. The heat pump is equipped with two evaporators. The purpose of the evaporator 41 is to condense the water present in the vapour by means of a cold water loop 42 and a battery 16. The purpose of the evaporator 29 is to condense the alcohol present in the vapour which has been previously separated from the water condensed by the separator 17 and the cyclone 25. The distillation slops leaving the device give up their energy to the wine entering the device via the exchanger 7. The wine has previously been degassed in the degassing vessel 3, in communication with the vacuum pump 1.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

REST AVAILABLE COPY

(19) RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

INSTITUT NATIONAL DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

PARIS

Nº de publication :

là n'utiliser que pour les

Nº d'enregistrement national :

2 553 098

- Int Cl4 : C 12 F 1/00.
- DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

Α1

- (22) Date de dépôt : 11 mai 1983.
- (30) Priorité :

SAINT LAUMER Daniel de. - FR.

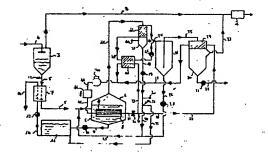
(72) Inventeur(s): Daniel de Saint Laumer.

(71) Demandeur(s): CEZILLY François, CLARAC Charles et

- Date de la mise à disposition du public de la demande: BOPI « Brevets » nº 15 du 12 avril 1985.
- (60) Références à d'autres documents nationaux apparentés :
- (73) Titulaire(s):
- (74) Mandataire(s): Daniel de Saint Laumer.
- (54) Dispositif de distillation d'alcool à faible consommation d'énergie.
- (57) Dispositif destiné à réaliser la distillation de l'alcool avec une faible consommation d'énergie.

Le dispositif est caractérisé par la présence d'une pompe à vide 1, qui le maintient sous une faible pression (de l'ordre de 150 mb environ). L'énergie nécessaire à la vaporisation est fournie par le condenseur 8 d'une pompe à chaleur, qui est. placée dans la cuve de vaporisation. La pompe à chaleur est équipée de deux évaporateurs. L'évaporateur 41, par l'intermédiaire d'une boucle d'eau froide 42 et d'une batterie 16, a pour fonction de condenser l'eau contenue dans la vapeur. L'évaporateur 29 a pour fonction de condenser l'alcool contenu dans la vapeur, qui a été préalablement séparée de l'eau condensée par le séparateur 17 et le cyclone 25.

Les vinesses quittent le dispositif cèdent leur énergie au vin entrant dans le dispositif par l'échangeur 7. Le vin a préalablement été dégagé dans la cuve de dégazage 3, en relation avec la pompe à vide 1.



1. EXPOSE

1

20

30

40

La crise de l'énergie a conduit les Gouvernements à envisager l'utilisation de produits de substitution au pétrole . Parmi ceux ci figure l'alcool d'origine agricole , qui pourrait être utiliser comme carburant automobile . Le problème est de dépenser le moins possible d'énergie à le produire , tout en réalisant les investissements les moins couteux possibles .

L'alcool agricole est obtenu par distillation à partir d'un certain nombre de produits le contenant en faible proportion : vins de qualité inférieure , jus fermentés , sous produits de la fabrication du

sucre à partir de la betterave ,.....

Si nous nous référons aux chiffres , publiés par le COMITE FRANCAIS

DE L'ELECTROTHERMIE dans une brochure éditée en Septembre 1980 dont

les auteurs sont MM. GREBOVAL et MULLER , nous nous apercevons que la

distillation représente en valeur 10 à 14 % du prix de vente des pro
ducteurs d'alcool et en énergie entre 30 à 50 % de la chaleur de com
bustion de l'alcool . Ce cernier chiffre plus que tout autre remet en

question le bien fondé de l'idée d'utiliser l'alcool comme carburant.

Le Dispositif selon la présente invention diminue notoirement la con
sommation d'énergie nécessaire à la distillation . Il a pu être conçu

grace aux renseignements fournis par les travaux de MM. R.C. PEMBER
TON et C.J. MASH (Division of Chemical Standards , National Physical

Laboratory , Tendington U.K. - Publication 1978 of Academic Press

Inc. London Ltd), ainsi qu'à la publication de MM. R.C. W ILHOIT et

B.J. ZW OLINSKI (J. Phys. Chem. Réf. Data , Vol. 2 , Supply 1 , 1973).

2. DISPOSITIF

2.1. PRINCIPE

Le dispositif consiste à faire entrer le vin (dans l'industrie de la distillerie on appelle vin tout jus fermenté quelque soit la matière première initiale : jus de raisin , de mélasse ,...) dans un circuit sous faible pression P . On porte le vin à une température T , à la quelle il se vaporise . La vapeur est un mélange d'alcool et d'eau , la température T est chosie pour que la vaporisation ait lieu jusqu'à ce que le vin ne soit plus que , selon le terme technique , de la vinasse , c'est à dire un jus ne contenant plus que quelques traces d'alcool . Le mélange de vapeur issu de l'opération est ensuite ramené à une température à laquelle la vapeur d'eau se condense avec molgré tout un peu de vapeur d'alcool . Le reste de vapeur d'alcool est séparé de l'eau liquide et ramené à une température à la quelle elle se condense à son tour .

elle se condense à son tour .
La pression P , sous la quelle le système fonctionne est de l'ordre de 150 mb . Celle ci permet , comme nous le verrons ci aprés , d'obtenir des vinasses en chauffant le vin à 50 - 55 °C , de condenser la vapeur d'eau à une température de l'ordre de 40 - 45 °C et la vapeur d'alcool à une température de l'ordre de 30 °C . Les températures évoquées permettent l'utilisation d'une pompe à chaleur (PAC) standard fonctionnant au Fréon R 22 , avec un COP de l'ordre de 5,5 à 6 . Le condenseur permet de réchauffer le vin , l'ensemble

évaporatif permet de refroidir les vapeurs . O Le principe de fonctionnement de la PAC étant bien connu de l'homme de l'homme de l'Art , nous ne le décrirons pas .

Nous nous contenterons de rappeler à ce dernier que , si nous avons choisi une gamme de pressions correspondant à une gamme de températures compatibles avec la technologie des PAC fonctionnant au Fréon R 22 , c'est que ces dernières ont un rapport Puissance / Prix su pèrieur à celui des PAC fonctionnant aux Fréons R 12 ; R 114 ... Or l'industrie de la distillerie est une industrie saisonnière travaillant environ 100 jours par An . En conséquence , s'il est bon de lui proposer des dispositifs consommant peu d'énergie , il faut aussi que ceux ci soient assez peu couteux , pour être amortis en 100 jours de travail par An . Aussi a-t-on choisi de se placer dans la gamme de températures où les PAC fonctionnant au Fréon R 22 peuvent être utilisées . Cependant le dispositif peut fonctionner à des pressions et par conséquent à des températures plus élevées , qui impliqueront des investissements plus couteux , mais qui font néanmoins partie intégrante de la présente Demande de Brevet . Cette description sommaire du principe du dispositif appele des explications complémentaires , qui trouvent leurs sources dans les travaux des chercheurs mentionnés ci dessus . On trouvera en Annexe 1 la photocopie des Tables dressées par MM. PEMBERTON et MASH, qui donnent pour une température donnée, les 20 proportions d'équilibre d'alcool dans le liquide et d'alcool dans la vapeur , ainsi que la pression d'équilibre . Quatre Tables ont été dressées pour les températures de 30 - 50 - 70 et 90 °C. Par exemple, pour la première table, la première colonne indique la température : 303,15 K, soit 30 °C. La 2 éme colonne indique la proportion x d'alcool dans le mélange liquide en équili-25 bre avec la vapeur , soit 0,00435 , le reste soit 0,99565 étant par conséquent de l'eau . La 3 éme colonne indique la proportion y d'alcool dans le mélange de vapeur en équilibre avec le liquide soit : 0,0412 , le reste 0,9588 étant de la vapeur d'eau . La 4 éme 30 colonne indique le pression à la quelle cet équilibre est réalisé. L'unité de pression exprimée est le 1/1000 de bar ou 10 mb . On sait donc que pour x=0.00435, on a y=0.0412, la pression d'équilibre étant de 44,13 mb . Celà veut dire que , si l'on soument un mélange d'alcool et d'eau contenant 0,10 d'alcool et 0,90 d'eau à une température de 30 $^\circ$ C et à une pression de 44,13 mb , celui ci va s'évaporer jusqu'à ce qu'il contienne 0,00435 d'alcool et 0,99655 d'eau , le mélange de vapeur titrant alors 0,0412 d'alcool et 0,9588 de vapeur d'eau . A ce moment là l'évaporation s'arrète , le liquide et la vapeur sont en équilibre . A portir de ces Tables , nous avons dressé en Annexe 2 les courbes 40 des proportions x " à peu prés constantes " d'alcool dans le mélange liquide en équilibre avec la vapeur , en fonction de la température portée en abcisse et de la pression portée en ordonnées. Les Tables de Pemberton et Mash nous ont permis de dresser la courbe 45 x = 0,0043; x = 0,027; x = 0,067Les Tables des constantes thermodynamiques de la vapeur d'eau ont permis d'ajouter la courbe x=0 , c'est à dire celle de l'eau pure . Nous voyons sur ces courbes que , pour une température de 54 °C , qui est la température à peu près maxima compatible avec une PAC fonctionnant au R 22 il faut , pour obtenir x compri 0 et 0,0043 , une pression entre 145 et 150 mb . C'est ainsi compris entre 50 qu'on été déterminées les gammes de pressions et de températures dans lesquelles le dispositif selon l'invention doit fonctionner pour avoir un rendement optimum .

A partir des mêmes documents nous avons dressé en Annexe 3 les courbes des proportions y " à peu prés constantes " d'alcool dans un mélange vapeur en équilibre avec un mélange liquide, puis la courbe y = 0 correspondant à l'eau pure. Naus voyons qu'il suffit d'abaisser la température de quelques degrés pour provoquer la condensation de l'eau. On note cependant que, si cette eau reste trop longtemps au contact du mélange vapeur, l'équilibre vapeur - liquide, tel que défini et chiffré par MM. PEMBERTON et MASH, aura le temps de se réaliser. C'est là qu'intervient le dispositif.

2.2. DESCRIPTION DU DISPOSITIF 10 Le dispositif est constitué par un circuit dans lequel le vin , les vapeurs , les condensats et les vinasses vont transiter . Celui ci est mis en pression à 145 - 150 mb par une pompe à vide l , qui est en relation par une canalisation 2 avec une cuve de dégazage 3 dans laquelle le vin à une température moyenne de 20 °C est envoyé par une canalisation 4 . Les tables de Pemberton et Mash montrent qu'à cette température et à cette pression il ne se produit aucune évapo ration du mélange eau - alcool . Le vin quitte la cuve de dégazage 3 pour être envoyé par une canalisation 5 vers une cuve d'évaporation 6 . Il passe préalablement par un échangeur 7 , où il récupère une partie importante de l'énergie des vinasses . La cuve d'évaporation 6 20 est équipée d'un échangeur 8 , qui n'est outre que le condenseur de la PAC . Grace à celui ci le vin est porté à la température de 54° C sous une pression de 145 à 150 mb . L'évaporation , telle que chif frée par MM. PIMBERTON et MASH , se produit alors jusqu'à ce que l'on n'ait plus dans la cuve d'évaporation 6 que des vinasses , dont le titre d'alcool est compris entre 0 et 0,0043 . A ce moment les vinosses sont transférées , grace à une canalisation 9 sur laquelle on a monté une pompe 10 dans un bac tampon 11 . Lorsque la cuve d'évaporation 6 est vide une vanne 12 permet l'envoi d'une nouvelle quantité de vin dans la cuve ó pendant qu'une pompe 13 , située sur une ca nalisation 14 reliant le bac tampon 11 à l'échangeur 7 , alimente ce dernier en vinasses à 54 °C , qui permettent le préchauffage du vin. Les vinasses représentant environ 65 % du vin injecté dans la cuve de distillation δ , la température du vin sera protée à 35 $^{\circ}$ C environ à la sortie de l'échangeur 7 . C quittent la cuve d'évaporation 6 par une canali-Les vopeurs à 54° sotion 15 , qui les transfert à une botterie à eau froide où leur température est ramenée à un peu moins de 54 ° C , ce qui provoque la condensation de la vapeur d'eau . Afin que le contact entre les con-40 densats ainsi créés et les vapeurs d'alcool soit le plus court pas sible , la batterie 16 est en position verticale de sorte que les condensats tombent immédiatement par gravité dans une cuve de séparation 17 , d'où ils sont extraits par une canalisation 18 , équipée d'une pompe 19 . On note aussi sur la canalisation 18 , en aval de la pompe 19 , un alcoométre 20 agissant sur une vanne 21 , qui fonctionne de la manière suivante . Si le taux d'alcool contenu dans l'eau trés faible , la vanne 21 envoit l'eau vers le bac tampon 11 par la canalisation 22 . Si le taux d'alcool est supèrieur à un taux de ré-50 férence , la vanne 21 renvoit le mélange dans la cuve d'évaporation 6 par la canalisation 23 .

On note que le dispositif , batterie 16 et séparateur 17 , permettent de séparer l'eau des vapeurs d'alcool beaucoup plus rapidement qu'une colonne de distillation où l'équilibre x , y tend à se réaliser sur tout le cheminenemnt parcouru par la vapeur entre les différents pla-

teaux de la colonne .

La vopeur quitte la cuve de séparation 17 par la canalisation 24 ,
mais elle entraîne avec elle de fines gouttelettes d'eau , aussi dé bouche-t-elle de la canalisation 25 , dont la mission est de parfaire
la séparation . La force centrifuge et la différence de densité entre

10 la vapeur et les gouttes d'eau projetent ces dernières contre les parois du cyclone dans le fond duquel elles s'écoulent par gravité. Le liquide ainsi récupéré est relativement chargé d'alcool. Aussi est il extrait du cyclone par une canalisation 26, équipée d'une pompe 27 et renvoyé dans la cuve de vaporisation 6.

Les vapeurs d'alcool pur quittent le cyclone par la canalisation 28 en direction d'une batterie à détente directe où leur température est ramenée à 30 ° C . A cette température et sous la pression de 145 à 150 mb la condensation de l'alcool est totale . Il est récuméré dans une cuve 30 d'où il est extrait par une canalisation 31 , équipée

20 d'une pompe 32. On note le branchement sur la cuve 30 d'une canali sation 33 en relation avec la pompe à vide 1, qui permet de mettre le circuit sous pression de 145 à 150 mb.

Le circuit de la PAC est le suivant . Le Fréon quitte le condenseur 8 par une canalisation 35 , qui le mène à un détendeur 36 , puis à une vanne d'où partent deux canalisations 38 et 39 . La 38 transporte le Fréon vers la batterie à détente directe 29 , puis en direction du

Fréon vers la batterie à détente directe 29, puis en direction du compresseur 40. La 39 transporte le Fréon vers un évaporateur 41 en relation avec une boucle d'eau froide 42, animée par une pompe 43 qui alimente la batterie 16. On note la présence sur la cuve de sé -

paration 17 d'une sonde thermique 44 , qui commande le fonctionnement de la pompe 43 de telle manière que la température dans le séparateur 17 soit exactement celle choisie .

2.3. CALCULS

Nous avons dressé en Annexe 4, grace aux tables de Pemberton et

5 Mash, les courbes de proportions x et y des mélanges d'eau et
d'alcool, liquides et vapeur en équilibre en fonction des pressions
a une température de 50 ° C. Compte tenu des faibles différences de
proportions relevées aux températures de 30, 50, 70 et 80 ° C dans
les tables mentionnées ci dessus, nous assimilerons ces courbes à

0 celles qui auraient pu être tracées pour une température de 50 ° C.
Ces courbes permettent de déterminer que pour un vin à 8 % d'alcool

celles qui auraient pu être tracées pour une température de 50° C.
Ces courbes permettent de déterminer que , pour un vin à 8 % d'alcool correspond un point X sur la courbe des x indiquant une pression de 0,199 bar et un point Y sur la courbe des y indiquant une proportion de 0,425.

Nous remarquerons que la courbe y est relativement régulière, aussi est ce avec une faible marge d'erreur que nous pouvons dire qu'au cours de l'opération qui va ramener un vin contenant 8 % d'alcool à l'êtat de vinasse en contenant 0,48 %, la teneur moyenne des vapeurs issues de la distillation sero

v = (0,425 + 0:0478) . 1/2 = 0.2364

y = (0.425 + 0.0478) 1/2 = 0.2364Au début de l'opération nous avons pour un mélange de 1 Kg : alcool 0.080

eau 0,920 le mélange de vapeur contenant 0,2354 d'alcool

```
La quantité de vapeur créée sera de :
             0,080 / 0,2364 = 0,3384 \text{ Kg}, soit environ 35 %.
     Les vinasses rerpésentent donc approximativement 65 % d'un vin à 8 %
     d'alc∞1.
               2.3.1. CALCUL PAR LA CONDENSATION DES VAPEURS
 5
     Compte tenu des masses envisagées , nous supposerons pour simplifier
     les colculs , que l'eau et l'alcool ont le même densité . I Kg de vin
     a permis la création de 350 Gr de vapeur contenant 80 Gr d'alcool et
     par conséquent 270 Gr d'eau . On sait que la chaleur latente de vapo-
     risation de l'eau à 54 ° C est de 566,7 KCal / Kg . Si la vapeur
     d'eau à 54 ° C est ramenée à l'êtat liquide à 50 ° C , l'énergie fri-
     gorifique a lui fournir est de
                                         154,4 KCal / Kg de vin .
              (566,7+4):0,27
     On sait par la publication de MM. W ILHOIT et ZW ALINSKI , que la cha-
     leur de vaporisation de l'alcool à 30 C est de 219 KCal / Kg , que
    la chaleur spécifique de la vapeur d'alcool est de 0,21 KCal / Kg et
     que la chaleur spécifique de l'alcool liquide est de 0,68 KCal/Kg/D
     On sait aussi d'après le diagramme Annexe 3 que les vapeurs d'alcool
     à la pression de 150 mb se condensent à 36 ° C . Dans ces conditions
20
     l'énergie frigorifique à fournir est de
       0.08(54.36).0.21+(0.08.219)+0.08(36.30).0.68 = 24.8 \text{ KCal/Kg de vin.}
     La puissance frigorifique totale nécessaire est donc de
                154, 4 + 24, 8 = 179, 2 \text{ KCal / Kg de vin}
     Fonctionnant sur une température d'évaporation de 30 ° C et une tem -
25
     pérature de sortie de condenseur de 54 ° C , la PAC oura un COP thé -
     rique de :
                (273 + 54) : (54 - 30)
                                            =
     On peut donc rasisonablement envisager un COP pratique de 6 . Ce qui
     implique une consommation électrique , pour assurer les besoins fri -
. 30
     gorifiques ci dessus de :
                                 35,8 KCal / Kg de vin
                 179,2 / 5 =
     et une puissance calorifique de : 🖰
                 179,2 + 35,8
                               = 215 KCal / Kg de vin .
               2.3.2. CALCUL PAR LES BESOINS CALORIFIQUES
35
     Les besoins calorifiques sont les suivants : il faut porter l Kg de
     vin de 35 ° C ( température de sortie de l'échangeur 7 ) à 54 ° C et
     vaporiser 270 Gr d'eau et 80 Gr d'alcool ( dont la chaleur de vapo -
     risation à 54 °C est de 216 KCal/Kg )
     mise à température de l'eau
                                     0,92(54-35)
                                                       17,5 KCal/Kg de vin
40
     mise à température de l'alcool 0,08(54-35)
                                                       1,5
                                                  =
     vaporisation de 270 Gr d'eau
                                     0, 27.566, 7
                                                      153,0
                                     0,08.211
     vaporisation de l'alcool
                                                      16.9
       Total des besoins calorifiques
                                                      188,9 KCal/Kg de vin
     On voit que les besoins calorifiques sont supèrieurs à la puissance
     calorofique de la PAC . Lors de la réalisation il faudra aussi tenir
     compte des déperditions de la machine . Cependant pour parer à toute
     éventualité , le dispositif prévoit l'adjonction au circuit de la PAC
     d'une batteire de condensation 45 , placée sur la canalisation 46 de
```

.

Fréon R 22 reliant le compresseur 40 au condenseur 8 .

3. DEPENSES D'ENERGIE

1.

5

La consommation de 35,8 KCal d'électricité aura donc permis de produire 80 Gr d'alcool , soit
35,8 . 100 = 358 KCal / 800 Gr d'alcool de densité 0,8
donc 358 KCal / litre d'alcool , soit encore
(358 / 860) . 100 = 41,6 Kwh / hectolitre d'alcool .
On note aussi que pour une production de 10 000 hl d'alcool / An , soit 4,167 hl / heure , la puissance calorifique de la PAC sera de 215 . 10 . 100. 4,167 = 896 000 KCal / heure .

REVENDICATIONS

- Dispositif selon la présente demande de Brevet , caractérisé en ce qu'il prévoit que la distillation du vin se fera sous vide partiel , réalisé grace à une pompe à vide 1 .
- Dispositif selon la revendication l'caractérisé en ce que la faible pression, générée par la pompe à vide l', permet que l'énergie né cessaire à la distillation soit fournie à des températures compatibles avec la technologie des pompes à chaleur fonctionnant de préférence au Fréon R 22. La totalité du système d'échange thermique de la pompe à chaleur est utilisée: le condenseur 8 sert à fournir l'énergie nécessaire à la vaporisation du vin , les évaporateurs 41 et 29 servent à condenser les vapeurs d'eau et d'alcool.
- Dispositif selon les revendications l et 2 caractérisé en ce que le vin passe d'abord par une cuve de dégazage 3 en relation avec la pompe à vide l, puis par un échangeur 7 où il récupérere l'énergie des vinosses avant d'atteindre la cuve de vaporisation 6 dans laquelle on trouve le condenseur 8 de la pompe à chaleur.
- Dispositif selon les revendications 1 , 2 et 3 ci dessus , carac térisé en ce que les vapeurs issues de la cuve de vaporisation 6 sont condensées en de deux temps . Les vapeur d'eau sont condensées dans une batterie 16 en relation par une boucle d'eau froide 42 avec l'évaporateur 41 . Les goutelettes d'eau et les vapeurs d'alcool sont séparées par un séparateur 17 , puis par un cyclone 25 . Les vapeurs d'alcool sont cendensées par le second évaporateur 29 de la pompe à chaleur , en l'occurence une batterie à détente directe .
- Dispositif selon les revendications 1 , 2 , 3 et 4 ci dessus , caractérisé en ce que liquide issu du séprateur 17 peut être envoyé , grace à l'action d'un alcoomètre 20 sur une vanne 21 , soit vers les les vinasses , soit vers la cuve de vaporisation 6 en fonction de sa teneur en alcool , alors que le liquide issu du cyclone 25 est automotiquement renvoyé vers la cuve de vaporisation 6 .
- 6 Dispsositif selon les revendications 1, 2, 3, 4 et 5 ci dessus, caractérisé en ce que les vinasses issues de la cuve de vaporisation 6 sont dirigées vers un bac tampon 11, d'où elles sont reprises en direction de l'échangeur 7 au moment où le vin issu de la cuve de dégazage 3 passe par l'échangeur 7.
- Dispositif selon les revendications 1, 2, 3, 4, 5 et 6 ci dessus caractérisé en ce qu'il permet des économies d'énergie très importantes dans la distillation de l'alcool sans pour autant utiliser les systèmes de recompression mécanique de l'alcool.

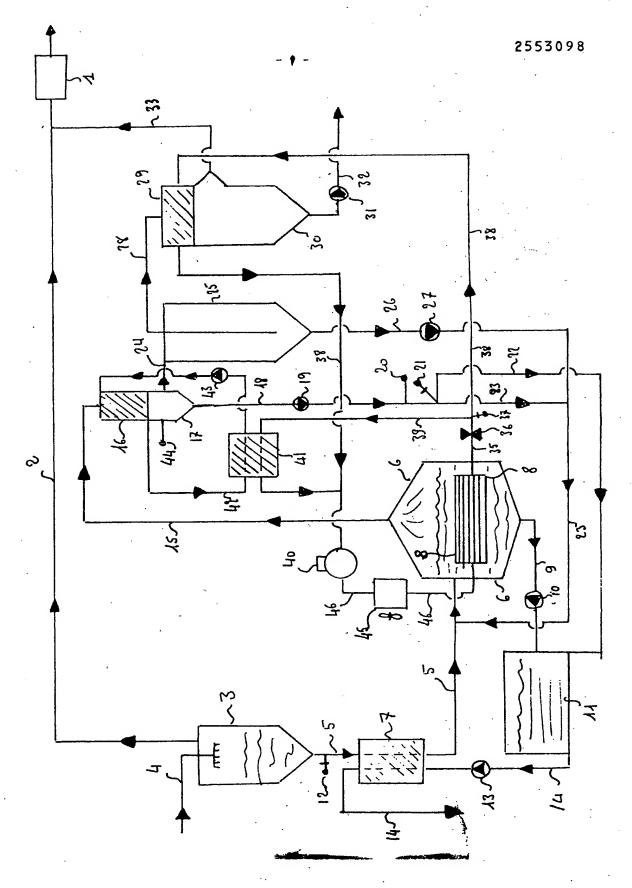
874

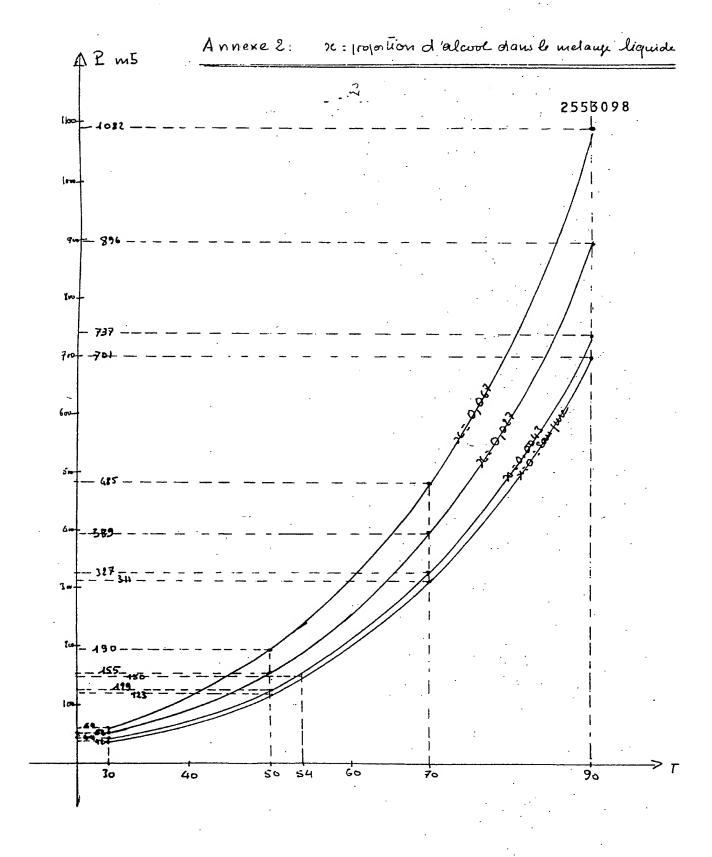
TABLE 2. Experimental and (experimental—calculated) vapour pressures p and δp respectively, activity coefficients f_1 of water and f_2 of ethanol, and excess Gibbs free energies G^E for liquid mixtures of $\{(1-x)H_2O + xC_2H_3OH\}$ at 303.15, 323.15, 343.15, and 363.15 K in equilibrium with vapour phases containing mole fraction p of ethanol. In column 1 x has been corrected for the mass of the components present at equilibrium in the vapour phase

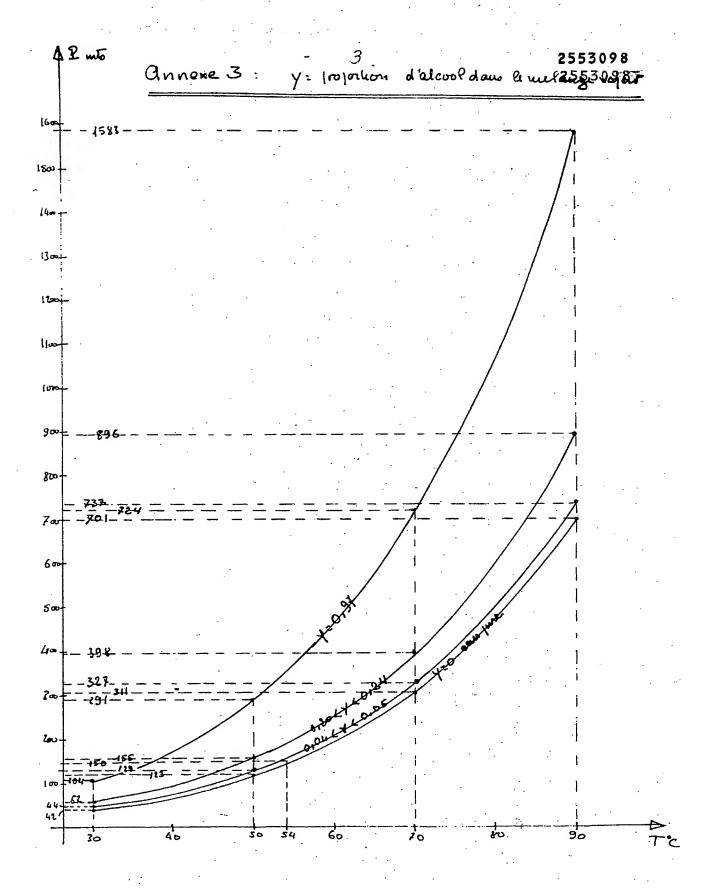
		_	mponents p	resent at equ	monum in i	me vapour pi	iase	•
_	T/K	Phang	у.	p/kPa	õp∕kPa.	· ln fi	ln ∫2	G ^x /J mol⁻¹
	303.15	0.00435	0.0412	4.413	0.001	0.00004	1.391	15.4
	- 3'	0.01524	0.1230	4.803	0.003	0.00039	1.355	53.0
	3335	0.02727	0.2043	5.203	0.002	0.00113	1.320	93.5
	•	0.04633	0.2975	5.781	-0.007	0.00295	1.273	155.7
		0.06783	0.3753	6.386	0.003	0.00608	1.221	223.0
		0.10991	0.4743	7,329	0.001	0.01709	1.109	345.6
		0.17111	0.5479	8.189	0.002	0.04813	0.9205	497.5
		0.24688	0.5907	8.723	-0.007	· 0.1082	0.6926	636.4
		0.32385	0.6194	9.085	0.011	0.1820	0.5069	723.9
		0.38655	0.6406	9.303	-0.003	0.2471	0.3885	760.5
	•	0.41758	0.6508	9.403	-0.005	0.2811	0.3378	768.2
		0.50492	0.6797 -	9.663	0.001	0.3835	0.2179	755.8
		0.58087	0.7037	9.869	0.005	0.4758	0.1398	707.4
		0.63434	0.7329	, 9.999	-0.001	0.5391	0.09889	655.0
		0.72455	0.7810	10.199	-0.003	0.6437	0.04932	537.0
		0.80840	0.8337	10.341	0.001	0.7447	0.01844	397.2
		0,85785	0.8705	10.394	-0.003	0.7987	0.00754	302.5
		0.89064	0.8979	10.427	0.003	0.8255	0.00365	235.7
		0.89934	0.9056	10.435	0.004	0.8309	0.00301	217.6
	•	0.92444	0.9284	10.445	-0.001	0.8432	0.00181	-164.8
		0.95370	0.9556	10.457	-, 0.004	0.8554	0.00103	102.3
		0.97315	0.9739/	10.467	-0.002	0.8691	0.00052	60.1
		0.98153	0.9819	10.473	0.003	0.8788	0.00030	41.6
				$\sigma(p) = 1$	0.0053 kPa	•	•	
X	323.15	0.00434	0.0478	12.921 4	0.007	0.00004	1.583	18.6
^		0.01522	0.1450	14.249	0.009	0.00051	1.536	64.2
	20:C.	0.02722	0.2259	15.555	-0.006	0.00160	1.486	112.8
		0.04623	0.3182	17.379	-0.006	0.00459	1.407	186.7
		0.06776	0.3893	19.088	0.002	0.00986	1.320	265.0
	•	. 0.10983	0.4738-	21,522	0.004	0.02628	1.152	402.7
		0.17103	0.5355	23.585	-0.001	0.06379	0.9218	565.6
		0.24681	0.5753	24.961	-0.008	0.1265	0.6829	708.9
		0.32380	0.6044	25.933	0.015	0.2001	0.4975	796.4
		0.38844	0.6270	26,572	-0.004	0.2667	0.3769	831.5
	•	0.41750	0.6370 -	26.336	-0.007	0.2980	0.3304	837.0
		0.50485	0.6681	27.564	-0.001	0.3971	0.2142	818.8
		0.58031	0.6989 -	28.131	0.006	0.4364	0.1388	764.2
		0.63429	0.7239	28.489	0.002	0.5486	0.09848	706.9
		0.72451	0.7735	29.006	-0.001	0.6519	0.04949	578.9
		0.76377	0.7981	29.176	~0.009	0.6970	0.03398	512.1
		0.80838	0.8286	29.346	0.001	0.7479	0.02011	428.7
		0.85785	0.8664	29.470	0.004	0.8009	0.00942	327.6
		0.89064	0.8942	29.511	-0.001	0.8315	0.00500	256.3
		0.89934	0.9019	29.527	0.007	0.8388	0.00414	236.9
		× 0.92445	0.9250	29.529	-0.003	0.8580	0.00228	179.8
		0.95370	0.9531	29.529	100.0-	0.8784	0.00096	111.7
	•	0.97315	0.9724	29.154	-0.004	0.8937	0.00038	65.5
		0.98153	0.9808	29.510	0.001	0.9016	0.00020	45.3
		•			0.007 _s kPa			•

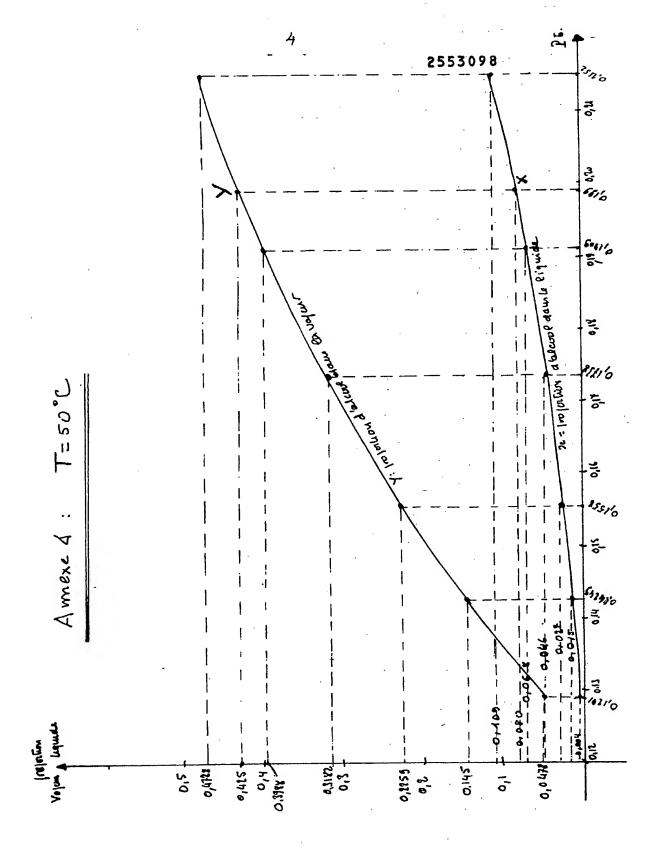
. TABLE 2-continued

T/K	x	y	p/kPa	δp/kPa	$-\ln f_1$	$\ln f_2$	G ^E /J mol ⁻¹
343.15	0.00432	0.0512	32,760	-0.016	0,00005	1.697	21.1
Took	0.01517	0.1532	36.359	0.014	0.00062	1.640	72.7
40	0.02712	0.2348	39.819	-0.010	0.00199	1.576	127.5
	0.04616	0.3245	44.442	-0.020	0.00580	1.476	210.2
	0.06760	0.3906	48.569	0.018	0.01243	1.366	296.5
	, 0.10967	0.4662		0.001	0.03201	1.164	445.5
	0.17086	0.5216~	58.586	-0.004	0.07294	0.9118	617.0
	0.24667	0.5604	61.796	-0.004	0.1368	0.6684	764.1
	0.32371	0.5904	64.113	0.012	0.2096	0.4845	851.9
	0.38828	0.6139	65.695	-0.002	0.2752	. 0.3655	885.2
	0.41734	0.6244	66.342	-0.008	0.3059	0.3200	889.5
	0.50470	0.6578	68.138	0.001	0.4014	0.2078	866.5
	0.58067	0.6907	69.518	0.000	0.4864	0.1360	· 807.1
	0.63418	0.7170	70.396	0.009	0.5461	0.09726	746.0
	0.72444	0.7681	71.591	. 0.003	0.6469	0.04948	610.9
	0.76372	0.7934	71.970	-0.013	0.6909	0.03433	540.6
	0.80836	0.8247	72.315	0.007	0.7403	0.02086	452.9
	0.85784	0.8635	72.552	0.003	0.7923	0.01039	346.8
	0.89064	0.8917	72.623	0.014	0.8239	0.00584	271.9
	0.89935	0.8995	72.614	0.001	0.8318	0.00491	251.5
	0.92445	0.9229	72.593	-0.002	0.8538	0.00278	191.4
	0.95370	0.9515	72.512	-0.007	0.8792	0.00113	119.2
	0.97315	0.9713	72.433	-0.001	0.8980	0.00043	70.0
	0.98153	0.9801	72,388	0.000	0.9071	0.00022	48.4
			σ(p) =	0.012 ₀ kPa			
363.15	0.00429	0.0520	73,726	0.009	0.00006	1.758	23.0
	0.01507	0.1539 _	. 81.909	0.013	0.00073	1.689	79.1
goc	0.02693	0.2337	89.620	-0.008	0.00234	1.615	138.1
J	0.04594	0.3200	99.667	-0.019	0.00673	1.498	227.2
	0.06731	0.3823	108.298	0.020	0.01417	1.374	319.2
	0.10939	0.4530-	119.548	-0.003	0.03541	1.154	476.4
	0.17057	0.5058	128.811	-0.002	0.07774	0.8919	654.1
	0.24642	0.5449	135.640	0.001	0.1414	0.6481	804.0
	0.32356	0.5763	140.677	0.005	0.2133	0.4668	891.6
	0.38800	0.6010	144.188	0.003	0.2771	0.3508	923.0
	0.41705	0.6123	145,622	-0.009	0.3068	0.3068	926.2
	0.50445	0.6430	149.595	0.001	0.3985	0.1989	899.2
	U.58044	0.6830	152.616	0.006	0.4796	0.1302	835.8
	0.63399	0.7106	154.470	-0.003	0.5368	0.09319	771.6
	0.72433	0.7639	157.003	0.002	0.6324	0.04778	630.9
	0,76364	0.7901	157.811	-0.003	0.6737	0.03358	558.2
	0.80833	0.8224	158.489	-0.004	0.7201	0.02091	467.8
	0.85783	0.8618	158.914	0.002	0.7705	0.01079	358.7
	0.89065	0.8903	158.987	0.008	0.8030	0.00611	281.5
	0.89935	0.8931	158.963	-0.005	0.8114	0.00511	260.5
•	0.92445	0.9216	158.868	0.004	0.8354	0.00279	198.4
	0.95370	0.9506	158.600	-0.007	0.8627	0.00102	123.5
	0.97315	0.9708	158.354	0.000	0.8806	0.00034	72.4
		0.9797	158.227	0.003	0.8883	0.00016	50.0
	0.98153	0.9797	138.447			U.UUUIO	20.0









2. . .

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:
BLACK BORDERS
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
☐ FADED TEXT OR DRAWING
☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
□ other:

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.